

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 61-021182

(43)Date of publication of application : 29.01.1986

(51)Int.Cl.

C09K 11/85

G21K 4/00

(21)Application number : 59-141489

(71)Applicant : FUJI PHOTO FILM CO LTD

(22)Date of filing : 10.07.1984

(72)Inventor : NAKAMURA TAKASHI

(54) FLUORESCENT SUBSTANCE AND ITS PREPARATION

(57)Abstract:

NEW MATERIAL: A cerium activated rare earth element halide fluorescent substance shown by the formula I (Ln is rare earth element of Y, La, Gd, or Lu; MI is alkali metal of Li, Na, K, Cs, or Rb; X and X' are Cl, Br, or I; a is in $0 < a \leq 10.0$; x is in $0 < x \leq 0.2$).

EXAMPLE: A compound shown by the formula II.

USE: Showing stimulative emission when the fluorescent substance is irradiated with radiation, and excited with electromagnetic wave, useful as a fluorescent substance for a panel for converting radiation image, such as medical radiation photographing e.g., X-ray photographing, industrial radiation photographing, e.g., nondestructive examination of material, and a fluorescent substance for radiation sensitized screen.

PREPARATION: A raw material mixture of a fluorescent substance to provide a relative ratio corresponding to the formula III is prepared, and the mixture is calcined in a weak reducing atmosphere at $500 \sim 1,300^\circ \text{C}$.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Best Available Copy

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑫ 公開特許公報(A)

昭61-21182

⑬ Int.Cl.⁴

C 09 K 11/85
G 21 K 4/00

識別記号

庁内整理番号

7215-4H
6656-2G

⑭ 公開 昭和61年(1986)1月29日

審査請求 未請求 発明の数 2 (全9頁)

⑮ 発明の名称 蛍光体およびその製造法

⑯ 特 願 昭59-141489

⑰ 出 願 昭59(1984)7月10日

⑱ 発 明 者 中 村 隆 神奈川県足柄上郡開成町宮台798番地 富士写真フイルム株式会社内

⑲ 出 願 人 富士写真フイルム株式 南足柄市中沼210番地
会社

⑳ 代 理 人 弁理士 柳川 泰男

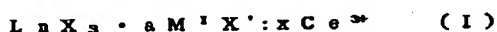
明 細 書

1. 発明の名称

蛍光体およびその製造法

2. 特許請求の範囲

1. 組成式(I):



(ただし、LnはY、La、GdおよびLuからなる群より選ばれる少なくとも一種の希土類元素であり; M^bはLi、Na、K、CsおよびRbからなる群より選ばれる少なくとも一種のアルカリ金属であり; XおよびX'はそれぞれCl、BrおよびIからなる群より選ばれる少なくとも一種のハロゲンであり; そしてaは0<a≤10.0の範囲の数値であり、xは0<x≤0.2の範囲の数値である)

で表わされるセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体。

2. 組成式(I)におけるaが0.1≤a≤2.0の範囲の数値であることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の蛍光体。

3. 組成式(I)におけるaが0.2≤a≤1.0であることを特徴とする特許請求の範囲第2項記載の蛍光体。

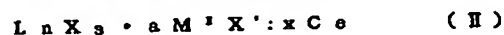
4. 組成式(I)におけるLnがYおよびLaのうちの少なくとも一種であることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の蛍光体。

5. 組成式(I)におけるM^bがCsおよびRbのうちの少なくとも一種であることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の蛍光体。

6. 組成式(I)におけるXおよびX'がそれぞれClおよびBrのいずれかであって、かつX≠X'であることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の蛍光体。

7. 組成式(I)におけるxが10⁻⁴≤x≤10⁻²の範囲の数値であることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載の蛍光体。

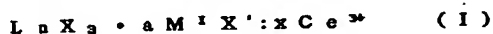
8. 化学量論的に組成式(II):



(ただし、LnはY、La、GdおよびLuからなる群より選ばれる少なくとも一種の希土類元

素であり； M^I はLi、Na、K、CsおよびRbからなる群より選ばれる少なくとも一種のアルカリ金属であり；XおよびX'はそれぞれCl、BrおよびIからなる群より選ばれる少なくとも一種のハロゲンであり；そしてaは $0 < a \leq 10.0$ の範囲の数値であり、xは $0 < x \leq 0.2$ の範囲の数値である）

に対応する相対比となるように蛍光体原料混合物を調製したのち、この混合物を真空雰囲気中で500乃至1300℃の範囲の温度で焼成することを特徴とする組成式(I)：



(ただし、Ln、 M^I 、X、X'、aおよびxの定義は前述と同じである)

で表わされるセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体の製造法。

9. 組成式(II)におけるaが $0.1 \leq a \leq 2.0$ の範囲の数値であることを特徴とする特許請求の範囲第8項記載の蛍光体の製造法。

10. 組成式(II)におけるaが $0.2 \leq a \leq$

3

3. 発明の詳細な説明

【発明の分野】

本発明は、蛍光体およびその製造法に関するものである。さらに詳しくは、本発明は、セリウムにより賦活されている希土類ハロゲン化物系蛍光体およびその製造法に関するものである。

【発明の技術的背景】

セリウムで賦活したハロゲン化物系蛍光体の一種として、従来よりセリウム賦活希土類オキシハロゲン化物蛍光体($LnOX : Ce$ 、ただしLnはY、La、GdおよびLuからなる群より選ばれる少なくとも一種の希土類元素であり；XはClおよびBrからなる群より選ばれる少なくとも一種のハロゲンである)が知られている。たとえば特開昭55-12144号公報に開示されているように、この蛍光体はX線、電子線および紫外線などの放射線で励起したのち可視乃至赤外線領域の電磁波で励起すると近紫外発光(輝光発光)を示し、放射線像変換方法に用いられる輝度性蛍光体として有用であることが見出されている。

5

1.0であることを特徴とする特許請求の範囲第9項記載の蛍光体の製造法。

11. 組成式(II)におけるLnがYおよびLaのうちの少なくとも一種であることを特徴とする特許請求の範囲第8項記載の蛍光体の製造法。

12. 組成式(II)における M^I がCsおよびRbのうちの少なくとも一種であることを特徴とする特許請求の範囲第8項記載の蛍光体の製造法。

13. 組成式(II)におけるXおよびX'がそれぞれClおよびBrのいずれかであって、かつ $X \neq X'$ であることを特徴とする特許請求の範囲第8項記載の蛍光体の製造法。

14. 組成式(II)におけるxが $10^{-3} \leq x \leq 10^{-2}$ の範囲の数値であることを特徴とする特許請求の範囲第8項記載の蛍光体の製造法。

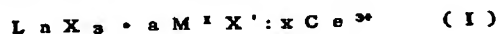
15. 蛍光体原料混合物の焼成を700乃至1000℃の範囲の温度で行なうことを特徴とする特許請求の範囲第8項記載の蛍光体の製造法。

4

【発明の要旨】

本発明は、上記セリウム賦活希土類オキシハロゲン化物系蛍光体とは異なる新規なセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体およびその製造法を提供することを目的とするものである。

発明の蛍光体は、組成式(I)：



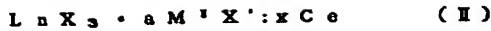
(ただし、LnはY、La、GdおよびLuからなる群より選ばれる少なくとも一種の希土類元素であり； M^I はLi、Na、K、CsおよびRbからなる群より選ばれる少なくとも一種のアルカリ金属であり；XおよびX'はそれぞれCl、BrおよびIからなる群より選ばれる少なくとも一種のハロゲンであり；そしてaは $0 < a \leq 10.0$ の範囲の数値であり、xは $0 < x \leq 0.2$ の範囲の数値である)

で表わされるセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体である。

また、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体の製造法は、化学量論的に

6

組成式(II)：



(ただし、LnはY、La、GdおよびLuからなる群より選ばれる少なくとも一種の希土類元素であり；M^IはLi、Na、K、CsおよびRbからなる群より選ばれる少なくとも一種のアルカリ金属であり；XおよびX'はそれぞれCl、BrおよびIからなる群より選ばれる少なくとも一種のハロゲンであり；そしてaは0<a≤10.0の範囲の数値であり、xは0<x≤0.2の範囲の数値である)

に対応する相対比となるように蛍光体原料混合物を調製したのち、この混合物を真空雰囲気中で500乃至1300℃の範囲の温度で焼成することを特徴とする。

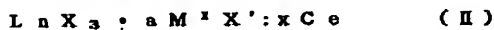
組成式(I)で表わされる本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体は、X線、紫外線、電子線などの放射線を照射した後、500～850nmの波長領域の電磁波で励起すると近紫外乃至青色領域に輝光を示す。

7

3) ハロゲン化物、酸化物、硝酸塩、硫酸塩などのセリウムの化合物からなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物、

を用意する。場合によっては、さらにハロゲン化アンモニウム(NH₄X^{II}；ただし、X^{II}はCl、BrまたはIである)などをフラックスとして使用してもよい。

蛍光体の製造に際しては、上記1)の希土類元素ハロゲン化物、2)のアルカリ金属ハロゲン化物および3)のセリウム化合物を用いて、化学量論的に、組成式(II)：



(ただし、LnはY、La、GdおよびLuからなる群より選ばれる少なくとも一種の希土類元素であり；M^IはLi、Na、K、CsおよびRbからなる群より選ばれる少なくとも一種のアルカリ金属であり；XおよびX'はそれぞれCl、BrおよびIからなる群より選ばれる少なくとも一種のハロゲンであり；そしてaは0<a≤10.0の範囲の数値であり、xは0<x≤

また、組成式(I)で表わされる本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体は、X線、紫外線、電子線などの放射線を照射して励起する場合にも近紫外乃至青色領域に発光(瞬時発光)を示す。

[発明の構成]

本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体は、たとえば、以下に記載するような製造法により製造することができる。

まず、蛍光体原料として、

- 1) YCl₃、YBr₃、YI₃、LaCl₃、LaBr₃、LaI₃、GdCl₃、GdBr₃、GdI₃、LuCl₃、LuBr₃およびLuI₃からなる群より選ばれる少なくとも一種の希土類元素ハロゲン化物、
- 2) LiCl、LiBr、LiI、NaCl、NaBr、NaI、KCl、KBr、KI、CsCl、CsBr、CsI、RbCl、RbBrおよびRbIからなる群より選ばれる少なくとも一種のアルカリ金属ハロゲン化物、

8

0.2の範囲の数値である)

に対応する相対比となるように秤量混合して、蛍光体原料の混合物を調製する。

本発明の蛍光体の製造法において、輝光発光輝度並びに瞬時発光輝度の点から、組成式(II)において希土類元素を表わすLnはYおよびLaのうちの少なくとも一種であるのが好ましく、アルカリ金属を表わすM^IはCsおよびRbのうちの少なくとも一種であるのが好ましい。また、ハロゲンを表わすXおよびX'はそれぞれClおよびBrのいずれかであるのが好ましく、XとX'は異なるのが好ましい。アルカリ金属ハロゲン化物の含有量を表わすa値は0.1≤a≤2.0の範囲にあるのが好ましく、特に好ましくは0.2≤a≤1.0の範囲である。同じく輝光発光輝度並びに瞬時発光輝度の点から、組成式(II)においてセリウムの賦活量を表わすx値は10⁻⁸≤x≤10⁻⁶の範囲にあるのが好ましい。

蛍光体原料混合物の調製は、

1)上記1)、2)および3)の蛍光体原料を準

に混合することによって行なってもよく、あるいは、

ii) まず、上記1) および2) の蛍光体原料を混合し、この混合物を100℃以上の温度で数時間加熱したのち、得られた熱処理物に上記3) の蛍光体原料を混合することによって行なってもよいし、あるいは、

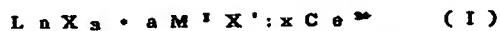
iii) まず、上記1) および2) の蛍光体原料を溶液の状態で混合し、この溶液を加温下（好ましくは50～200℃）で減圧乾燥、真空乾燥、噴霧乾燥などにより乾燥し、しかるのち得られた乾燥物に上記3) の蛍光体原料を混合することによって行なってもよい。

なお、上記ii) の方法の変法として、上記1)、2) および3) の蛍光体原料を混合し、得られた混合物に上記熱処理を施す方法を利用してもよい。また、上記iii) の方法の変法として、上記1)、2) および3) の蛍光体原料を溶液の状態で混合し、この溶液を乾燥する方法を利用してもよい。

11

上記焼成によって粉末状の本発明の蛍光体を得られる。なお、得られた粉末状の蛍光体については、必要に応じて、さらに、洗浄、乾燥、ふるい分けなどの蛍光体の製造における各種の一般的な操作を行なってもよい。

以上に説明した製造法によって製造されるセリウム賦活希土類ハロゲン化合物系蛍光体は、組成式(I)：



(ただし、LnはY、La、GdおよびLuからなる群より選ばれる少なくとも一種の希土類元素であり；M^{IX}はLi、Na、K、CsおよびRbからなる群より選ばれる少なくとも一種のアルカリ金属であり；XおよびX'はそれぞれCl、BrおよびIからなる群より選ばれる少なくとも一種のハロゲンであり；そしてaは0<a≤10.0の範囲の数値であり、xは0<x≤0.2の範囲の数値である)

で表わされるものである。

本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化合物系

上記i)、ii)、およびiii)のいずれの方法においても、混合には、各種ミキサー、V型ブレンダー、ボールミル、ロッドミルなどの通常の混合機が用いられる。

次に、上記のようにして得られた蛍光体原料混合物を石英ボート、アルミナルツボ、石英ルツボなどの耐熱性容器に充填し、電気炉中で焼成を行なう。焼成温度は500～1300℃の範囲が適当であり、好ましくは700～1000℃の範囲である。焼成時間は蛍光体原料混合物の充填量および焼成温度などによっても異なるが、一般には0.5～6時間が適当である。焼成雰囲気としては、少量の水素ガスを含有する窒素ガス雰囲気、あるいは、一酸化炭素を含有する二酸化炭素雰囲気などの還元性の雰囲気を利用する。一般に上記2) の蛍光体原料として、セリウムの価数が四価のセリウム化合物が用いられるが、その場合には焼成過程において、上記還元性の雰囲気によって四価のセリウムは三価のセリウムに還元される。

12

光体はX線、紫外線、電子線などの放射線で励起すると近紫外乃至青色領域（発光のピーク波長：約360～380nm）に瞬時発光を示す。

第1図は、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化合物系蛍光体の瞬時発光スペクトルおよびその励起スペクトルを例示するものである。第1図において曲線1～4はそれぞれ、

1：LaBr₃・CsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体の発光スペクトル

2：LaBr₃・CsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体の励起スペクトル

3：LaCl₃・CsBr:0.001Ce³⁺ 蛍光体の発光スペクトル

4：LaCl₃・CsBr:0.001Ce³⁺ 蛍光体の励起スペクトル

である。

第1図から、本発明の蛍光体は紫外線励起下において近紫外乃至青色領域に瞬時発光を示すことが明らかである。また、その発光スペクトルのピーク波長はLaBr₃・CsCl:0.001Ce³⁺に

については385nmであり、 $\text{LaCe}_{0.5}\text{Br}_{0.5}:\text{Ce}^{3+}$ については375nmである。

以上二種類の蛍光体を例にとって、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体の紫外線励起の場合の瞬時発光スペクトルおよびその励起スペクトルを説明したが、本発明のその他の蛍光体についてもその発光スペクトルおよび励起スペクトルは、上述と同様の傾向を示すことが確認されている。また、本発明の蛍光体のX線および電子線励起の場合の瞬時発光スペクトルは、第1図または第2図に示される紫外線励起の場合の瞬時発光スペクトルとほぼ同様であることも確認されている。

また、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体はX線、紫外線、電子線などの放射線を照射したのち、500~850nmの可視乃至赤外領域の電磁波で励起すると近紫外乃至青色領域に輝光を示す。

第2図は、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体の具体例である $\text{LaBr}_{0.5}\text{Cs}_{0.5}$

15

第3図から明らかなように、 a 値が $0 < a \leq 10.0$ の範囲にある本発明の $\text{LaBr}_{0.5}\text{Cs}_{0.5}:\text{Ce}^{3+}$ 蛍光体のうちでも、 a 値が $0.1 \leq a \leq 2.0$ の範囲にある蛍光体は高輝度の輝光を示す。

なお、上記蛍光体についての a 値と瞬時発光強度との関係も第3図と同じような関係にある。さらに、 $\text{LaBr}_{0.5}\text{Cs}_{0.5}:\text{Ce}^{3+}$ 蛍光体以外の本発明の蛍光体についても、 a 値と輝光強度および瞬時発光強度それぞれとの関係は第3図と同じような傾向にあることが確認されている。

以上に説明した発光特性から、本発明の蛍光体は、特に医療診断を目的とするX線撮影等の医療用放射線撮影および物質の非破壊検査を目的とする工業用放射線撮影などにおいて使用される輝光性蛍光体利用の放射線像変換方法に用いられる放射線像変換パネル用の蛍光体として、あるいは同じく医療診断および非破壊検査等を目的とする放射線撮影に利用される放射線写真法に用いられる

$\text{Ce}^{3+}:\text{Ce}^{3+}$ 蛍光体の輝光励起スペクトルである。

第2図から、本発明の蛍光体は放射線照射後500~850nmの波長領域の電磁波で励起すると輝光を示すことが明らかである。

なお、上記本発明の蛍光体の輝光励起スペクトルは、瞬時発光スペクトル(第1図の曲線1)に一致する。

以上、 $\text{LaBr}_{0.5}\text{Cs}_{0.5}:\text{Ce}^{3+}$ 蛍光体の場合を例にとって、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化物系蛍光体の輝光励起スペクトルおよびその輝光励起スペクトルを説明したが、本発明のその他の蛍光体についてもその輝光励起スペクトルおよびその輝光励起スペクトルは上述とほぼ同様であることが確認されている。

第3図は、本発明の $\text{LaBr}_{0.5}\text{Cs}_{0.5}:\text{Ce}^{3+}$ 蛍光体における a 値と輝光強度[80KVpのX線を照射したのち、He-Neレーザー光(632.8nm)で励起した時の輝光強度]との関係を示すグラフである。

16

放射線増感スクリーン用の蛍光体として非常に有用である。

次に本発明の実施例を記載する。ただし、これらの各実施例は本発明を限定するものではない。

[実施例1]

臭化ランタン(LaBr_3) 378.9g、塩化セシウム(CsCl) 168.4gおよび酸化セリウム(CeO_2) 0.172gを蒸留水(H_2O) 800mlに添加し、混合して水溶液とした。この水溶液を60℃で3時間減圧乾燥した後、さらに150℃で3時間の真空乾燥を行った。

次に、得られた蛍光体原料混合物をアルミナルツボに充填し、これを高温電気炉に入れて焼成を行なった。焼成は、一酸化炭素を含む二酸化炭素雰囲気中にて900℃の温度で2時間かけて行なった。焼成が完了したのち焼成物を炉外に取り出して冷却した。このようにして、粉末状のセリウム賦活臭化ランタン系蛍光体($\text{LaBr}_{0.5}\text{Cs}_{0.5}:\text{Ce}^{3+}$)を得た。

18

【実施例2】

実施例1において、臭化ランタンおよび塩化セシウムに代りにそれぞれ、塩化ランタン(LaCl₃) 245.3gおよび臭化セシウム(CsBr) 213.0gを用いること以外は、実施例1の方法と同様の操作を行なうことにより、粉末状のセリウム賦活塩化ランタン系蛍光体(LaCl₃・CsBr:0.001Ce³⁺)を得た。

【実施例3】

実施例1において、臭化ランタンおよび塩化セシウムに代りにそれぞれ、臭化イットリウム(YBr₃) 328.9gおよび塩化リチウム(LiCl) 42.4gを用いること以外は、実施例1の方法と同様の操作を行なうことにより、粉末状のセリウム賦活臭化イットリウム系蛍光体(YBr₃・LiCl:0.001Ce³⁺)を得た。

次に、実施例1および2で得られた各蛍光体に紫外線で励起した時の発光スペクトルおよびその励起スペクトルを測定した。その結果を第1図に示す。

19

輝度発光強度を測定した。その結果を第1表に示す。

第1表

相対輝度発光強度	
実施例1	100
実施例2	95
実施例3	50

【実施例4】

実施例1において、塩化セシウムの量を臭化ランタン1モルに対して0~10.0モルの範囲で変化させること以外は、実施例1の方法と同様の操作を行なうことにより、塩化セシウムの含有量の異なる各種のセリウム賦活臭化ランタン系蛍光体(LaBr₃・aCsCl:0.001Ce³⁺)を得た。

次に、実施例4で得られた各蛍光体に管電圧80KVpのX線を照射した後He-Neレーザ

上述のように第1図において曲線1~4はそれぞれ、

1: LaBr₃・CsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体
(実施例1)の発光スペクトル

2: LaBr₃・CsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体
(実施例1)の励起スペクトル

3: LaCl₃・CsBr:0.001Ce³⁺ 蛍光体
(実施例2)の発光スペクトル

4: LaCl₃・CsBr:0.001Ce³⁺ 蛍光体
(実施例2)の励起スペクトル

を示す。

また、実施例1で得られたLaBr₃・CsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体に管電圧80KVpのX線を照射した後500~850nmの波長領域の光で励起した時の、輝度発光のピーク波長(365nm)における輝度励起スペクトルを測定した。その結果を第2図に示す。

さらに、実施例1~3で得られた各蛍光体に管電圧80KVpのX線を照射した後He-Neレーザ(波長:632.8nm)で励起した時の

20

(波長:632.8nm)で励起した時の輝度発光強度を測定した。その結果を第3図に示す。

第3図は、LaBr₃・aCsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体における塩化セシウムの含有量(a値)と輝度発光強度との関係を示すグラフである。

4. 図面の簡単な説明

第1図は、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化合物系蛍光体の具体例であるLaBr₃・CsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体およびLaCl₃・CsBr:0.001Ce³⁺ 蛍光体の瞬時発光スペクトルおよびその励起スペクトル(それぞれ曲線1、2、3および4)を示す図である

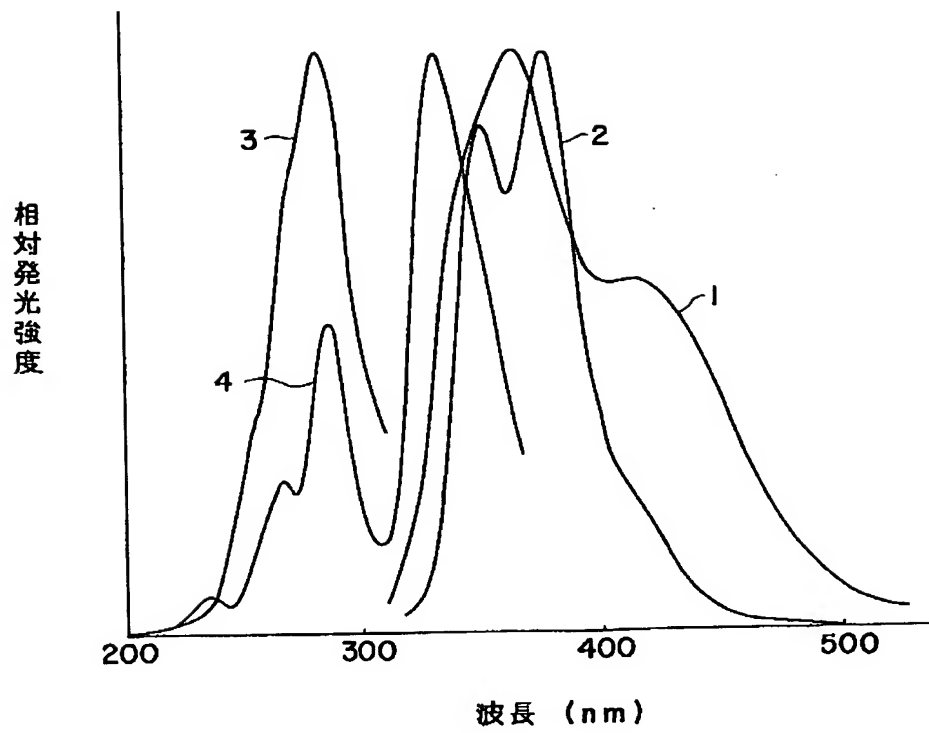
第2図は、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化合物系蛍光体の具体例であるLaBr₃・CsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体の輝度励起スペクトルを示す図である。

第3図は、本発明のセリウム賦活希土類ハロゲン化合物系蛍光体の具体例であるLaBr₃・aCsCl:0.001Ce³⁺ 蛍光体におけるa値と輝度

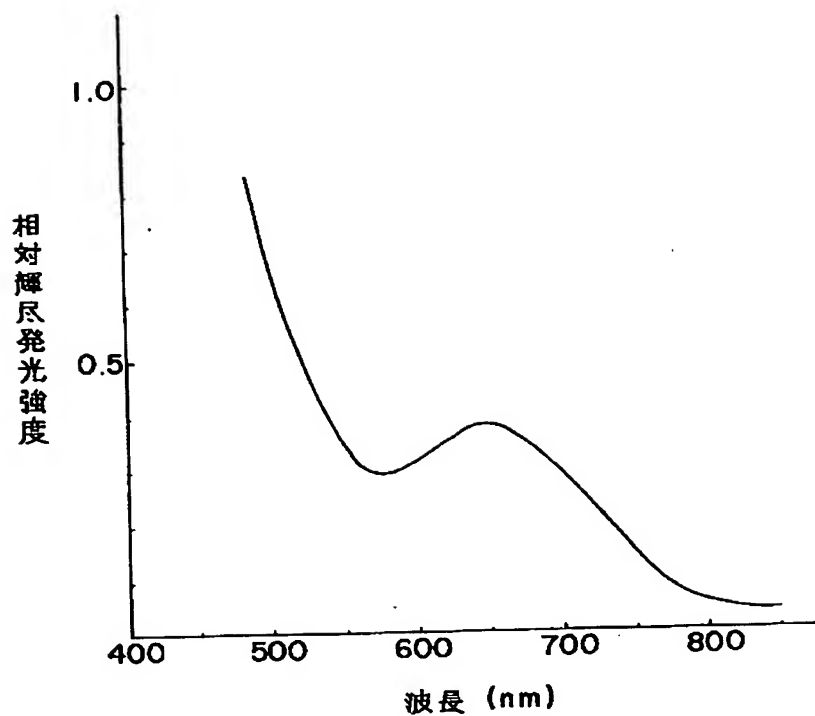
発光強度との関係を示すグラフである。

特許出願人 富士写真フィルム株式会社
代理人 弁理士 柳川 憲男

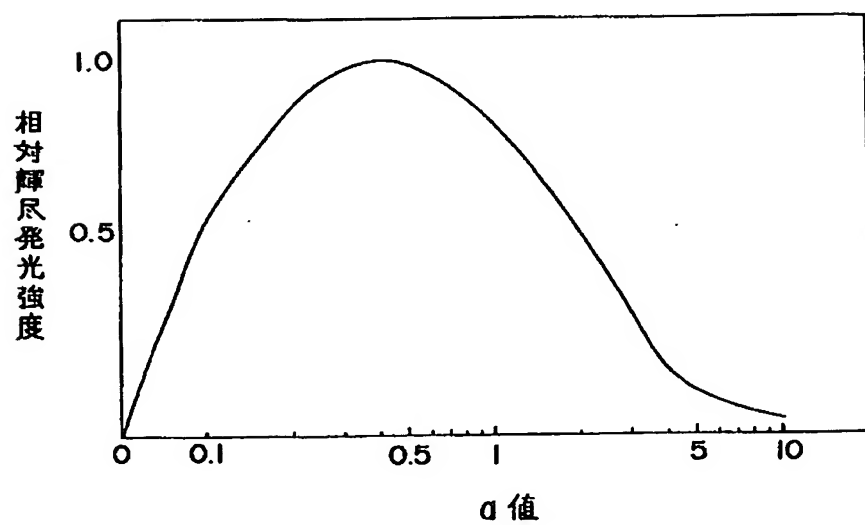
第 1 図



第 2 圖



第 3 圖



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☒ **FADED TEXT OR DRAWING**

☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.